



PCT
WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM
Internationales Büro
INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE
INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

<p>(51) Internationale Patentklassifikation ⁶ : C07D 239/52, 239/56, A01N 43/54</p>	A1	<p>(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 96/16047</p> <p>(43) Internationales Veröffentlichungsdatum: 30. Mai 1996 (30.05.96)</p>
<div style="display: flex; justify-content: space-between;"> <div style="width: 48%; vertical-align: top;"> <p>(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP95/04375</p> <p>(22) Internationales Anmeldedatum: 7. November 1995 (07.11.95)</p> <p>(30) Prioritätsdaten: P 44 40 930.3 17. November 1994 (17.11.94) DE 195 26 661.7 21. Juli 1995 (21.07.95) DE</p> <p>(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): BASF AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; D-67056 Ludwigshafen (DE).</p> <p>(72) Erfinder; und (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): KIRSTGEN, Reinhard [DE/DE]; Erkenbrechtstrasse 23e, D-67434 Neustadt (DE). OBERDORF, Klaus [DE/DE]; Bienenstrasse 3, D-69117 Heidelberg (DE). SCHÜTZ, Franz [DE/DE]; Müller-Thurgau-Weg 8, D-67435 Neustadt (DE). THEOBALD, Hans [DE/DE]; Queichstrasse 6, D-67117 Limburgerhof (DE). HARRIES, Volker [DE/DE]; Immengärtenweg 29e, D-67227 Frankenthal (DE).</p> <p>(74) Gemeinsamer Vertreter: BASF AKTIENGESELLSCHAFT; D-67056 Ludwigshafen (DE).</p> </div> <div style="width: 48%; vertical-align: top;"> <p>(81) Bestimmungsstaaten: AU, BG, BR, BY, CA, CN, CZ, FI, HU, JP, KR, KZ, MX, NO, NZ, PL, RU, SG, SK, UA, US, europäisches Patent (AT, BE, CH, DE, DK, ES, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).</p> <p>Veröffentlicht <i>Mit internationalem Recherchenbericht.</i></p> </div> </div>		
<p>(54) Title: 2-[(2-ALKOXY-6-TRIFLUOROMETHYL PYRIMIDINE-4-YL)-OXYMETHYLENE]-PHENYL-ACETIC ACID DERIVATIVES, PROCESSES AND INTERMEDIATE PRODUCTS FOR THEIR PRODUCTION AND THEIR USE</p> <p>(54) Bezeichnung: 2-[(2-ALKOXY-6-TRIFLUORMETHYLPYRIMIDIN-4-YL)-OXYMETHYLEN]-PHENYLESSIGSÄUREDERIVATE, VERFAHREN UND ZWISCHENPRODUKTE ZU IHRER HERSTELLUNG UND IHRE VERWENDUNG</p>		
<p>(57) Abstract</p> <p>2-[(2-alkoxy-6-trifluoromethyl pyrimidine-4-yl)-oxymethylene]-phenyl acetic acid derivatives of the formula (I) in which U is CH or N, V is O or NH, R is alkyl, R¹ is cyano, halogen, alkyl, alkyl halide, alkoxy, alkoxy halide and phenyl, and N is O or a whole number from 1 to 4, processes and intermediate products for their production and their use.</p>		
<div style="display: flex; justify-content: space-between;"> <div style="width: 48%;"> <p>(57) Zusammenfassung</p> <p>2-[(2-Alkoxy-6-trifluormethylpyrimidin-4-yl)-oxymethylen]-phenylessigsäurederivate der Formel (I), in der der Index und die Substituenten die folgende Bedeutung haben: U CH oder N; V O oder NH; R Alkyl; R¹ Cyano, Halogen, Alkyl, Halogenalkyl, Alkoxy, Halogenalkoxy und Phenyl; n 0 oder eine ganze Zahl von 1 bis 4; Verfahren und Zwischenprodukte zu ihrer Herstellung und ihre Verwendung.</p> </div> <div style="width: 48%; text-align: center;"> <p style="text-align: right;">(I)</p> </div> </div>		

LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AT	Österreich	GA	Gabon	MR	Mauretanien
AU	Australien	GB	Vereinigtes Königreich	MW	Malawi
BB	Barbados	GE	Georgien	NE	Niger
BE	Belgien	GN	Guinea	NL	Niederlande
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland	NO	Norwegen
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	NZ	Neuseeland
BJ	Benin	IE	Irland	PL	Polen
BR	Brasilien	IT	Italien	PT	Portugal
BY	Belarus	JP	Japan	RO	Rumänien
CA	Kanada	KE	Kenya	RU	Russische Föderation
CF	Zentrale Afrikanische Republik	KG	Kirgisistan	SD	Sudan
CG	Kongo	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	SE	Schweden
CH	Schweiz	KR	Republik Korea	SI	Slowenien
CI	Côte d'Ivoire	KZ	Kasachstan	SK	Slowakei
CM	Kamerun	LI	Liechtenstein	SN	Senegal
CN	China	LK	Sri Lanka	TD	Tschad
CS	Tschechoslowakei	LU	Luxemburg	TG	Togo
CZ	Tschechische Republik	LV	Lettland	TJ	Tadschikistan
DE	Deutschland	MC	Monaco	TT	Trinidad und Tobago
DK	Dänemark	MD	Republik Moldau	UA	Ukraine
ES	Spanien	MG	Madagaskar	US	Vereinigte Staaten von Amerika
FI	Finnland	ML	Mali	UZ	Usbekistan
FR	Frankreich	MN	Mongolei	VN	Vietnam

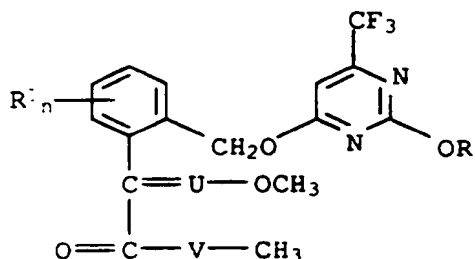
2-[(2-Alkoxy-6-trifluormethylpyrimidin-4-yl)-oxymethylen]-phenyl-essigsäurederivate, Verfahren und Zwischenprodukte zu ihrer Herstellung und ihre Verwendung

5

Beschreibung

Die vorliegende Erfindung betrifft 2-[(2-Alkoxy-6-trifluormethylpyrimidin-4-yl)-oxymethylen]-phenylessigsäurederivate der

10 Formel I



15

20 in der der Index und die Substituenten die folgenden Bedeutung haben:

U CH oder N;

25 V O oder NH;

R C₁-C₆-Alkyl;

30 R¹ Cyano, Halogen, C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy und Phenyl;

n 0 oder eine ganze Zahl von 1 bis 4, wobei die Reste R¹ verschieden sein können, wenn der Wert von n größer als 1 ist.

35 Daneben betrifft die Erfindung Verfahren und Zwischenprodukte zur Herstellung dieser Verbindungen und sie enthaltenden Mittel sowie deren Verwendung.

40 α -Hetaryloxymethylenphenyl- β -methoxy-acrylsäuremethylester werden in der Literatur als Fungizide beschrieben (EP-A 178 826, EP-A 278 595, EP-A 350 691). Außerdem werden in der EP-A 407 873 entsprechende α -[2-(6-Trifluormethylpyrimidin-4-yl)-oxymethylen-phenyl]- β -methoxy-acrylsäuremethylester mit acarizider und insektizider Wirkung beschrieben.

45

2

Außerdem sind α -[2-(Hetaryloxymethylen)-phenyl]- α -methoxyimino-essigsäuremethylester mit fungizider (EP-A 253 213, EP-A 254 426, EP-A 299 694, EP-A 363 818) und insektizider bzw. acarizider Wirkung (EP-A 407 873) bekannt.

5

Des weiteren werden in der Literatur α -[2-(Hetaryloxymethylen)-phenyl]- α -methoxyimino-essigsäuremethyamide mit fungizider (EP-A 396 692) und insektizider bzw. acarizider Wirkung (EP-A 477 631) beschrieben.

10

Die Wirkung der dort beschriebenen Verbindungen gegen tierische Schädlinge ist jedoch in vielen Fällen unbefriedigend.

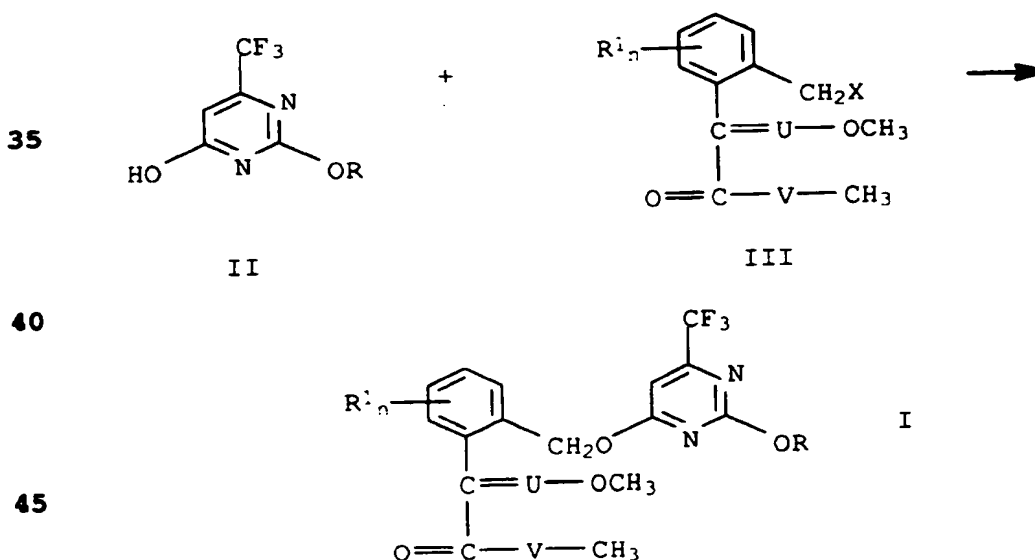
Der vorliegenden Erfindung lagen daher Verbindungen mit ver-

15 besserten Eigenschaften bei der Bekämpfung von Schadpilzen und tierischen Schädlingen, besonders Schadpilze, Insekten, Nematoden und Akaridien, insbesondere Insekten und Akaridien, als Aufgabe zugrunde.

20 Demgemäß wurden die eingangs definierten Verbindungen I gefunden. Des weiteren wurden Verfahren und Zwischenprodukte zu ihrer Herstellung, sie enthaltende Mittel und Verfahren zu ihrer Verwendung gefunden.

25 Die Herstellung der Verbindungen I erfolgt in Analogie zu den in der eingangs genannten Literatur beschriebenen Verfahren. Dabei erhält man die Verbindungen I beispielsweise dadurch, daß man ein Pyrimidin-4-ol der Formel II in an sich bekannter Weise in einem inerten organischen Lösungsmittel in Gegenwart einer Base mit

30 einem Benzylderivat der Formel III umsetzt.



3

In der Formel III steht X für eine nucleophil austauschbare Abgangsgruppe wie Halogen (z.B. Chlor, Brom und Iod) oder Alkyl- und Arylsulfonyl (z.B. Methylsulfonyl, Trifluormethylsulfonyl, Phenylsulfonyl und 4-Methylphenylsulfonyl).

5

Diese Umsetzung wird üblicherweise bei Temperaturen von 0°C bis 80°C, vorzugsweise 20°C bis 60°C durchgeführt.

- Geeignete Lösungsmittel sind aromatische Kohlenwasserstoffe wie
- 10 Toluol, o-, m- und p-Xylol, halogenierte Kohlenwasserstoffe wie Methylenchlorid, Chloroform und Chlorbenzol, Ether wie Diethylether, Diisopropylether, tert.-Butylmethylether, Dioxan, Anisol und Tetrahydrofuran, Nitrile wie Acetonitril und Propionitril, Alkohole wie Methanol, Ethanol, n-Propanol, Isopropanol, n-Butanol und tert.-Butanol, Ketone wie Aceton und Methylethylketon sowie
- 15 Dimethylsulfoxid, Dimethylformamid, Dimethylacetatamid, 1,3-Dimethylimidazolidin-2-on und 1,3-Dimethyltetrahydro-2(1H)-pyrimidinon besonders bevorzugt Methylenchlorid, Aceton und Dimethylformamid.

20

Es können auch Gemische der genannten Lösungsmittel verwendet werden.

- Als Basen kommen allgemein anorganische Verbindungen wie Alkali-
- 25 metall- und Erdalkalimetallhydroxide wie Lithiumhydroxid, Natriumhydroxid, Kaliumhydroxid, Calciumhydroxid, Alkalimetall- und Erdalkalimetalloxide wie Lithiumoxid, Natriumoxid, Calciumoxid und Magnesiumoxid, Alkalimetall- und Erdalkalimetallhydride wie Lithiumhydrid, Natriumhydrid, Kaliumhydrid und
- 30 Calciumhydrid, Alkalimetallamide wie Lithiumamid, Natriumamid und Kaliumamid, Alkalimetall- und Erdalkalimetallcarbonate wie Kaliumcarbonat und Calciumcarbonat sowie Alkalimetallhydrogencarbonate wie Kaliumcarbonat und Calciumcarbonat sowie Alkalimetallhydrogencarbonate wie Natriumhydrogencarbonat, metall-
- 35 organische Verbindungen, insbesondere Alkalimetallalkyle wie Methylolithium, Butyllithium und Phenyllithium, Alkylmagnesiumhalogenide wie Methylmagnesiumchlorid sowie Alkalimetall- und Erdalkalimetallalkoholate wie Natriummethanolat, Natriummethanolat, Kaliummethanolat, Kalium-tert.-butanolat und Dimethoxy-
- 40 magnesium außerdem organische Basen, z.B. tertiäre Amine wie Trimethylamin, Triethylamin, Di-isopropylethylamin und N-Methylpiperidin, Pyridin, substituierte Pyridine wie Collidin, Lutidin und 4-Dimethylaminopyridin sowie bicyclische Amine in Betracht.
- 45 Besonders bevorzugt werden Natriumhydroxid, Natriumhydrid, Kaliumcarbonat und Kalium-tert.-butanolat.

4

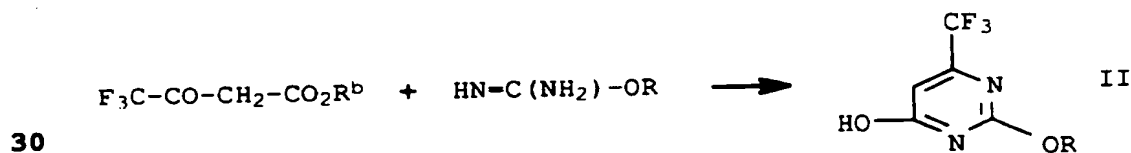
Die Basen werden im allgemeinen äquimolar, im Überschuß oder gegebenenfalls als Lösungsmittel verwendet.

Es kann für die Umsetzung vorteilhaft sein, eine katalytische Menge eines Kronenethers wie z.B. 18-Krone-6 oder 15-Krone-5 zuzusetzen.

Die Umsetzung kann auch in Zweiphasensystemen bestehen aus einer Lösung von Alkali- oder Erdalkalihydroxiden oder Alkali- oder Erdalkalicarbonaten in Wasser und einer organischen Phase wie z.B. halogenierten Kohlenwasserstoffen durchgeführt werden. Als Phasentransferkatalysatoren können Ammoniumhalogenide und -tetrafluoroborate wie z.B. Benzyltriethylammoniumchlorid, Benzyltributylammoniumbromid, Tetrabutylammoniumchlorid, Hexadecyltrimethylammoniumbromid oder Tetrabutylammoniumtetrafluoroborat sowie Phosphoniumhalogenide wie Tetrabutylphosphoniumchlorid oder Tetraphenylphosphoniumbromid eingesetzt werden.

Es kann für die Umsetzung vorteilhaft sein, zunächst die Verbindungen II mit Base zu behandeln und das resultierende Salz mit den Verbindungen III umzusetzen.

Die Verbindungen II können durch Kondensation von Trifluoracetessigsäureestern VI mit O-Alkylisoharnstoffen VII in Analogie zu bekannten Verfahren [vgl. J. Chem. Soc. 1946, 5] erhalten werden.



R^b in der Formel VI steht für eine C_1 - C_4 -Alkylgruppe, insbesondere Methyl oder Ethyl.

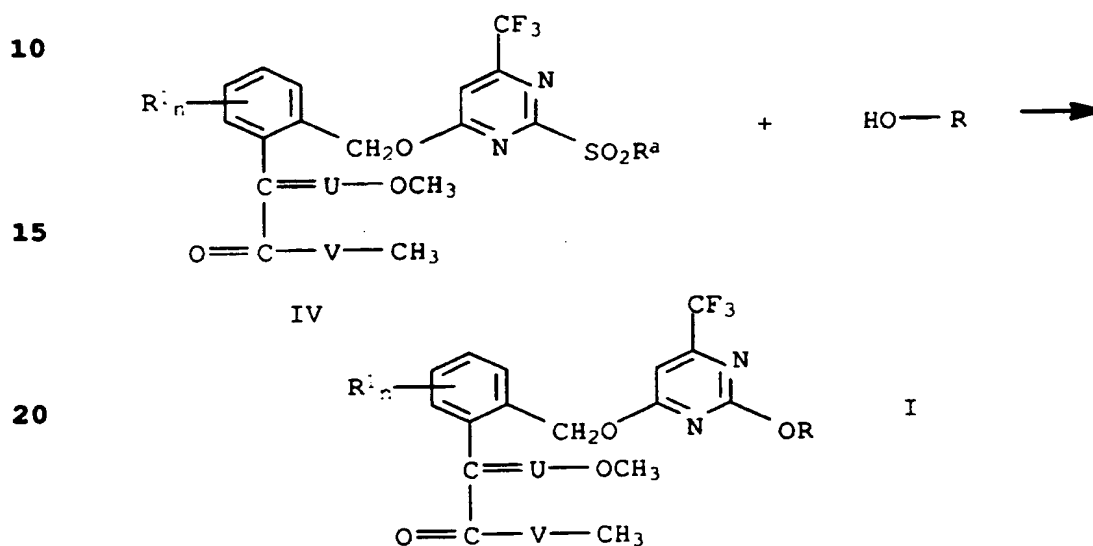
35 Die Umsetzung wird üblicherweise bei Temperaturen von 0°C bis 120°C , vorzugsweise 20°C bis 80°C , insbesondere bei der Siedetemperatur des Lösungsmittels. Als Lösungsmittel finden üblicherweise Alkohole, insbesondere Methanol oder Ethanol, Verwendung.

40 Die O-Alkylisoharnstoffe der Formel VII werden üblicherweise in Form ihrer Salze, insbesondere als Hydrohalogenide (z.B. Hydrochlorid und Hydrobromid) eingesetzt. Bei der Verwendung von Salzen empfiehlt es sich, die Umsetzung in Gegenwart einer Base (z.B. Erdalkalimetall- oder Alkalimetallalkoholate oder -hydroxide wie Natriummethanolat, Natriumethanolat, Kalium-tert.-

5

butylat, Natriumhydroxid, Kaliumhydroxid und Calciumhydroxid) durchzuführen.

Alternativ erhält man die Verbindungen I auch dadurch, daß man ein Sulfonderivat der Formel IV in an sich bekannter Weise [vgl. J. Med. Chem. 27, 1621 (1984; CH-A 649 068)] in Gegenwart einer Base mit einem Alkohol der Formel V umsetzt.



R^a in der Formel IV steht für C_1 - C_4 -Alkyl, insbesondere Methyl.

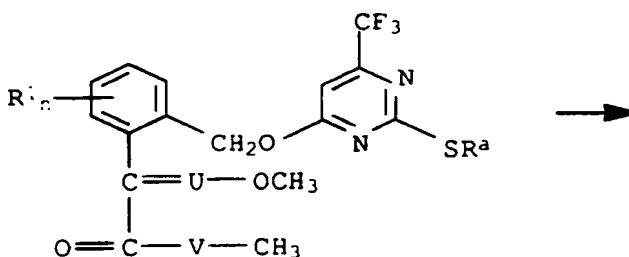
Als Basen eignen sich insbesondere Natriumhydrid, Kalium-tert.-butylat und Kaliumcarbonat.

Die Umsetzung wird im allgemeinen in einem inerten dipolaren aprotischen Lösungsmittel (insbesondere Dimethylsulfoxyd, Dimethylformamid und 1,3-Dimethyltetrahydro-2(1H)-pyrimidinon) durchgeführt.

Die für die Umsetzung benötigten Sulfonderivate der Formel IV erhält man ausgehend von den entsprechenden Sulfiden VIII durch Oxidation.

6

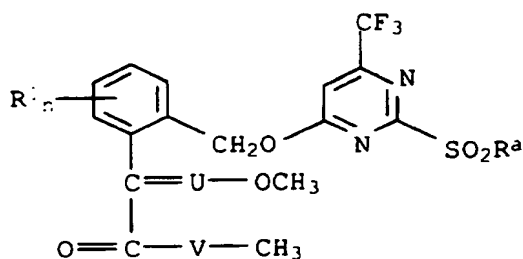
5



10

VIII

15



IV

20

Die Oxidation erfolgt nach aus der Literatur bekannten Verfahren beispielsweise mit Wasserstoffperoxid in konzentrierter Essigsäure [vgl. Chem. Pharm. Bull. 27, 183 (1978)] oder mit Natriumhypochlorid in Wasser [vgl. J. Prakt. Chem. 33, 165 (1966)].

25

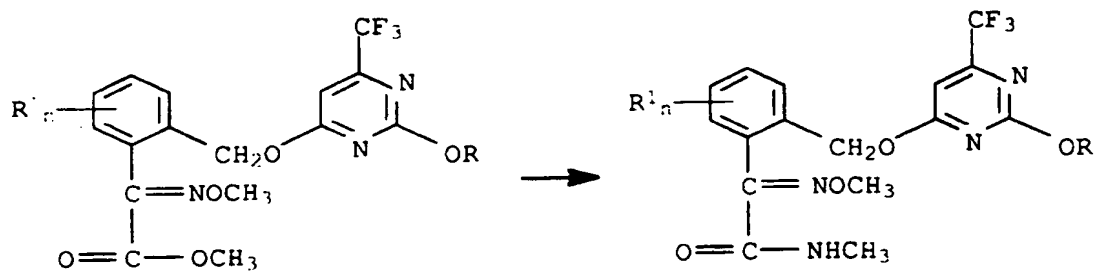
Die Benzylderivate der Formel III, in denen V für Sauerstoff steht, sind aus der eingangs zitierten Literatur bekannt. Benzyl-derivate II, in denen U für N und V für NH stehen, werden in der DE-A 43 05 502 beschrieben.

30

Alternativ erhält man die Verbindungen der allgemeinen Formel I, in denen U für N und V für NH steht, durch Aminolyse der entsprechenden Ester (V = O) (vgl. Houben-Weyl Bd. E5, S. 983f.).

35

40



Ib

Ic

45

Diese Umsetzung wird üblicherweise bei Temperaturen von 0°C bis 60°C, vorzugsweise 10°C bis 30°C, in einem inerten Lösungsmittel durchgeführt.

- 5 Methylamin kann gasförmig eingeleitet oder als wäßrige Lösung zudosiert werden.

- Geeignete Lösungsmittel sind aromatische Kohlenwasserstoffe wie Toluol, o-, m- und p-Xylol, halogenierte Kohlenwasserstoffe wie
- 10 Methylenchlorid, Chloroform und Chlorbenzol, Ether wie Diethylether, Diisopropylether tert.-Butylmethylether, Dioxan, Tetrahydrofuran und Anisol, Alkohole wie Methanol, Ethanol, n-Propanol, Isopropanol, n-Butanol und tert.-Butanol, besonders bevorzugt Methanol, Toluol und Tetrahydrofuran. Es können auch Ge-
- 15 mische der genannten Lösungsmittel verwendet werden.

Bei den in den vorstehenden Formeln angegebenen Definitionen der Symbole wurden Sammelbegriffe verwendet, die allgemein repräsentativ für die folgenden Substituenten stehen:

20

Halogen: Fluor, Chlor, Brom und Iod;

- Alkyl:** gesättigte, geradkettige oder verzweigte Kohlenwasserstoffreste mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen wie Methyl, Ethyl,
- 25 Propyl, 1-Methylethyl, Butyl, 1-Methylpropyl, 2-Methylpropyl, 1,1-Dimethylethyl, Pentyl, 1-Methylbutyl, 2-Methylbutyl, 3-Methylbutyl, 2,2-Dimethylpropyl, 1-Ethylpropyl, Hexyl, 1,1-Dimethylpropyl, 1,2-Dimethylpropyl, 1-Methylpentyl, 2-Methylpentyl, 3-Methylpentyl, 4-Methylpentyl, 1,1-Dimethylbutyl,
- 30 1,2-Dimethylbutyl, 1,3-Dimethylbutyl, 2,2-Dimethylbutyl, 2,3-Dimethylbutyl, 3,3-Dimethylbutyl, 1-Ethylbutyl, 2-Ethylbutyl, 1,1,2-Trimethylpropyl, 1,2,2-Trimethylpropyl, 1-Ethyl-1-methylpropyl und 1-Ethyl-2-methylpropyl;

- 35 **Halogenalkyl:** geradkettige oder verzweigte Alkylgruppen mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen (wie vorstehend genannt), wobei diese in Gruppen teilweise oder vollständig die Wasserstoffatome durch Halogenatome wie vorstehend genannt ersetzt sein können, z.B. C₁-C₂-Halogenalkyl wie Chlormethyl, Dichlormethyl, Trichlormethyl,
- 40 Fluormethyl, Difluormethyl, Trifluormethyl, Chlorfluormethyl, Dichlorfluormethyl, Chlordifluormethyl, 1-Fluorethyl, 2-Fluorethyl, 2,2-Difluorethyl, 2,2,2-Trifluorethyl, 2-Chlor-2-fluorethyl, 2-Chlor-2,2-difluorethyl, 2,2-Dichlor-2-fluorethyl, 2,2,2-Trichlorethyl und Pentafluorethyl;

45

8

Alkoxy: geradkettige oder verzweigte Alkylgruppen mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen (wie vorstehend genannt), welche über ein Sauerstoffatom (-O-) an das Gerüst gebunden sind;

- 5 **Halogenalkoxy:** geradkettige oder verzweigte Halogenalkylgruppen mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen (wie vorstehend genannt), welche über ein Sauerstoffatom (-O-) an das Gerüst gebunden sind; Im Hinblick auf ihre biologische Wirksamkeit sind besondere solche Verbindungen I bevorzugt, in denen R für C₂-C₅-Alkyl, 10 insbesondere C₂-C₄-Alkyl, steht.

Außerdem werden Verbindungen I bevorzugt, in denen n für 0 oder 1, insbesondere 0, steht.

- 15 Für den Fall, daß n nicht für 0 steht, werden Verbindungen I bevorzugt, in denen R¹ die folgende Bedeutung hat: Cyano, Fluor, Chlor, Methyl, Trifluormethyl und Methoxy.

- Außerdem werden Verbindungen I bevorzugt, in denen ein Rest R¹ 20 in 3-, 4- oder 5-Position des Phenylrings gebunden sind.

- Insbesondere sind im Hinblick auf ihre Verwendung die in der folgenden Tabelle zusammengestellten Verbindungen I bevorzugt. Die in der Tabelle für einen Substituenten genannten Gruppen stellen 25 außerdem für sich betrachtet (unabhängig von der Kombination, in der sie genannt sind) eine besonders bevorzugte Ausgestaltung des betreffenden Substituenten dar.

Tabelle 1

- 30 Verbindungen der Formel I, in denen U für CH und V für O steht (≡ Ia) und die Kombination der Substituenten R¹_n und R für eine Verbindung einer Zeile der Tabelle A entspricht

- 35 Tabelle 2

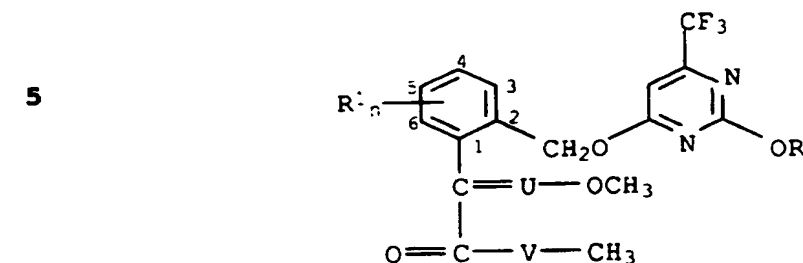
Verbindungen der Formel I, in denen U für N und V für O steht (≡ Ib) und die Kombination der Substituenten R¹_n und R für eine Verbindung einer Zeile der Tabelle A entspricht

- 40

Tabelle 3

- Verbindungen der Formel I, in denen U für N und V für NH steht (≡ Ic) und die Kombination der Substituenten R¹_n und R für eine 45 Verbindung einer Zeile der Tabelle A entspricht

Tabelle A



	Nr .	R ⁱ _n	R
15	01	H	CH ₃
	02	H	CH ₂ CH ₃
	03	3-Cl	CH ₂ CH ₃
	04	4-OCH ₃	CH ₂ CH ₃
20	05	H	CH ₂ CH ₂ CH ₃
	06	3-Cl	CH ₂ CH ₂ CH ₃
	07	H	CH(CH ₃) ₂
	08	3-Cl	CH(CH ₃) ₂
25	09	4-OCH ₃	CH(CH ₃) ₂
	10	5-C(CH ₃) ₃	CH(CH ₃) ₂
30	11	H	CH ₂ CH ₂ CH ₂ CH ₃
	12	H	CH ₂ CH(CH ₃) ₂
	13	H	CH(CH ₃)CH ₂ CH ₃

Die erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel I eignen sich zur Bekämpfung von tierischen Schädlingen aus der Klasse der Insekten, Akaridien und Nematoden, besonders der Insekten, insbesondere der Akaridien. Sie können im Pflanzenschutz sowie auf dem Hygiene-, Vorratsschutz- und Veterinärsektor als Fungizide und Schädlingsbekämpfungsmittel eingesetzt werden.

40 Zu den schädlichen Insekten gehören:

aus der Ordnung der Schmetterlinge (Lepidoptera) beispielsweise Adoxophyes orana, Agrotis ypsilon, Agrotis segetum, Alabama argillacea, Anticarsia gemmatilis, Argyresthia conjugella, Auto-
45 grapha gamma, Cacoecia murinana, Capua reticulana, Choristoneura fumiferana, Chilo partellus, Choristoneura occidentalis, Cirphis unipuncta, Cnaphalocrocis medinalis, Crocidolomia binotalis,

10

- Cydia pomonella, Dendrolimus pini, Diaphania nitidalis, Diatraea grandiosella, Earias insulana, Elasmopalpus lignosellus, Eupoecilia ambiguella, Feltia subterranea, Grapholitha funebrana, Grapholitha molesta, Heliothis armigera, Heliothis virescens,
- 5** Heliothis zea, Hellula undalis, Hibernia defoliaria, Hyphantria cunea, Hyponomeuta malinellus, Keiferia lycopersicella, Lambdina fiscellaria, Laphygma exigua, Leucoptera scitella, Lithocolletis blancardella, Lobesia botrana, Loxostege sticticalis, Lymantria dispar, Lymantria monacha, Lyonetia clerkella, Manduca sexta,
- 10** Malacosoma neustria, Mamestra brassicae, Mocis repanda, Operophtera brumata, Orgyia pseudotsugata, Ostrinia nubilalis, Pandemis heparana, Panolis flammea, Pectinophora gossypiella, Phthorimaea operculella, Phyllocnistis citrella, Pieris brassicae, Plathypena scabra, Platynota stultana, Plutella xylostella,
- 15** Prays citri, Prays oleae, Prodenia sunia, Prodenia ornithogalli, Pseudoplusia includens, Rhyacionia frustrana, Scrobipalpula absoluta, Sesamia inferens, Sparganothis pilleriana, Spodoptera frugiperda, Spodoptera littoralis, Spodoptera litura, Syllepta derogata, Synanthedon myopaeformis, Thaumtopoea pityocampa,
- 20** Tortrix viridana, Trichoplusia ni, Tryporyza incertulas, Zeiraphera canadensis, ferner Galleria mellonella und Sitotroga cerealella, Ephestia cautella, Tineola bisselliella;

aus der Ordnung der Käfer (Coleoptera) beispielsweise Agriotes

- 25** lineatus, Agriotes obscurus, Anthonomus grandis, Anthonomus pomorum, Apion vorax, Atomaria linearis, Blastophagus piniperda, Cassida nebulosa, Cerotoma trifurcata, Ceuthorrhynchus assimilis, Ceuthorrhynchus napi, Chaetocnema tibialis, Conoderus vespertinus, Crioceris asparagi, Dendroctonus refipennis, Diabrotica longi-
- 30** cornis, Diabrotica 12-punctata, Diabrotica virgifera, Epilachna varivestis, Epitrix hirtipennis, Eutinobothrus brasiliensis, Hylobius abietis, Hypera brunneipennis, Hypera postica, Ips typographus, Lema bilineata, Lema melanopus, Leptinotarsa decemlineata, Limonius californicus, Lissorhoptrus oryzophilus,
- 35** Melanotus communis, Meligethes aeneus, Melolontha hippocastani, Melolontha melolontha, Oulema oryzae, Ortiorrhynchus sulcatus, Ortiorrhynchus ovatus, Phaedon cochleariae, Phyllopertha horticola, Phyllophaga sp., Phyllotreta chrysocephala, Phyllotreta nemorum, Phyllotreta striolata, Popillia japonica, Psylliodes
- 40** napi, Scolytus intricatus, Sitona lineatus, ferner Bruchus rufimanus, Bruchus pisorum, Bruchus lentis, Sitophilus granaria, Lasioderma serricorne, Oryzaephilus surinamensis, Rhyzopertha dominica, Sitophilus oryzae, Tribolium castaneum, Trogoderma granarium, Zabrotes subfasciatus;

11

- aus der Ordnung der Zweiflügler (Diptera) beispielsweise
Anastrepha ludens, *Ceratitis capitata*, *Contarinia sorghicola*,
Dacus cucurbitae, *Dacus oleae*, *Dasineura brassicae*, *Delia*
coarctata, *Delia radicum*, *Hydrellia griseola*, *Hylemyia platura*,
5 *Liriomyza sativae*, *Liriomyza trifolii*, *Mayetiola destructor*,
Orseolia oryzae, *Oscinella frit*, *Pegomya hyoscyami*, *Phorbia*
antiqua, *Phorbia brassicae*, *Phorbia coarctata*, *Rhagoletis cerasi*,
Rhagoletis pomonella, *Tipula oleracea*, *Tipula paludosa*, ferner
Aedes aegypti, *Aedes vexans*, *Anopheles maculipennis*, *Chrysomya*
10 *bezziana*, *Chrysomya hominivorax*, *Chrysomya macellaria*, *Cordylobia*
anthropophaga, *Culex pipiens*, *Fannia canicularis*, *Gasterophilus*
intestinalis, *Glossina morsitans*, *Haematobia irritans*,
Haplodiplosis equestris, *Hypoderma lineata*, *Lucilia caprina*,
Lucilia cuprina, *Lucilia sericata*, *Musca domestica*, *Muscina*
15 *stabulans*, *Oestrus ovis*, *Tabanus bovinus*, *Simulium damnosum*;

- aus der Ordnung der Thripse (Thysanoptera) beispielsweise
Frankliniella fusca, *Frankliniella occidentalis*, *Frankliniella*
tritici, *Haplothrips tritici*, *Scirtothrips citri*, *Thrips oryzae*,
20 *Thrips palmi*, *Thrips tabaci*;

- aus der Ordnung der Hautflügler (Hymenoptera) beispielsweise
Athalia rosae, *Atta cephalotes*, *Atta sexdens*, *Atta texana*,
Hoplocampa minuta, *Hoplocampa testudinea*, *Iridomyrmex humilis*,
25 *Iridomyrmex purpureus*, *Monomorium pharaonis*, *Solenopsis geminata*,
Solenopsis invicta, *Solenopsis richteri*;

- aus der Ordnung der Wanzen (Heteroptera) beispielsweise
Acrosternum hilare, *Blissus leucopterus*, *Cyrtopeltis notatus*,
30 *Dysdercus cingulatus*, *Dysdercus intermedius*, *Eurygaster*
integriceps, *Euschistus impictiventris*, *Leptoglossus phyllopus*,
Lygus hesperus, *Lygus lineolaris*, *Lygus pratensis*, *Nezara*
viridula, *Piesma quadrata*, *Solubea insularis*, *Thyanta perditor*;

- 35 aus der Ordnung der Pflanzensauger (Homoptera) beispielsweise
Acyrtosiphon onobrychis, *Acyrtosiphon pisum*, *Adelges laricis*,
Aonidiella aurantii, *Aphidula nasturtii*, *Aphis fabae*, *Aphis*
gossypii, *Aphis pomi*, *Aulacorthum solani*, *Bemisia tabaci*,
Brachycaudus cardui, *Brevicoryne brassicae*, *Dalbulus maidis*,
40 *Dreyfusia nordmanniana*, *Dreyfusia piceae*, *Dysaphis radicola*,
Empoasca fabae, *Eriosoma lanigerum*, *Laodelphax striatella*,
Macrosiphum avenae, *Macrosiphum euphorbiae*, *Macrosiphon rosae*,
Megoura viciae, *Metopolophium dirhodum*, *Myzus persicae*, *Myzus*
cerasi, *Nephotettix cincticeps*, *Nilaparvata lugens*, *Perkinsiella*
45 *saccharicida*, *Phorodon humuli*, *Planococcus citri*, *Psylla mali*,
Psylla piri, *Psylla pyricol*, *Quadraspidiotus perniciosus*,
Rhopalosiphum maidis, *Saissetia oleae*, *Schizaphis graminum*,

12

Selenaspidus articulatus, *Sitobion avenae*, *Sogatella furcifera*,
Toxoptera citricida, *Trialeurodes abutilonea*, *Trialeurodes*
vaporariorum, *Viteus vitifolii*;

5 aus der Ordnung der Termiten (Isoptera) beispielsweise *Calotermes flavicollis*, *Leucotermes flavipes*, *Macrotermes subhyalinus*, *Odontotermes formosanus*, *Reticulitermes lucifugus*, *Termes natalensis*;

10 aus der Ordnung der Geradflügler (Orthoptera) beispielsweise *Gryllotalpa gryllotalpa*, *Locusta migratoria*, *Melanoplus bivittatus*, *Melanoplus femur-rubrum*, *Melanoplus mexicanus*, *Melanoplus sanguinipes*, *Melanoplus spretus*, *Nomadacris septemfasciata*, *Schistocerca americana*, *Schistocerca peregrina*,
15 *Stauronotus maroccanus*, *Schistocerca gregaria*, ferner *Acheta domestica*, *Blatta orientalis*, *Blattella germanica*, *Periplaneta americana*;

aus der Ordnung der Arachnoidea beispielsweise phytophage

20 Milben wie *Aculops lycopersicae*, *Aculops pelekassi*, *Aculus schlechtendali*, *Brevipalpus phoenicis*, *Bryobia praetiosa*, *Eotetranychus carpini*, *Eutetranychus banksii*, *Eriophyes sheldoni*, *Oligonychus pratensis*, *Panonychus ulmi*, *Panonychus citri*, *Phyllocoptruta oleivora*, *Polyphagotarsonemus latus*, *Tarsonemus pallidus*, *Tetranychus cinnabarinus*, *Tetranychus kanzawai*,
25 *Tetranychus pacificus*, *Tetranychus urticae*, Zecken wie *Amblyomma americanum*, *Amblyomma variegatum*, *Argas persicus*, *Boophilus annulatus*, *Boophilus decoloratus*, *Boophilus microplus*, *Dermacentor silvarum*, *Hyalomma truncatum*, *Ixodes ricinus*, *Ixodes*
30 *rubicundus*, *Ornithodoros moubata*, *Otobius megnini*, *Rhipicephalus appendiculatus* und *Rhipicephalus evertsi* sowie tierparasitische Milben wie *Dermanyssus gallinae*, *Psoroptes ovis* und *Sarcoptes scabiei*;

35 aus der Klasse der Nematoden beispielsweise Wurzelgallen-nematoden, z.B. *Meloidogyne hapla*, *Meloidogyne incognita*, *Meloidogyne javanica*, zystenbildende Nematoden, z.B. *Globodera pallida*, *Globodera rostochiensis*, *Heterodera avenae*, *Heterodera glycines*, *Heterodera schachtii*, migratorische Endoparasiten und
40 semi-endoparasitische Nematoden, z.B. *Heliocotylenchus multicinctus*, *Hirschmanniella oryzae*, *Hoplolaimus* spp, *Pratylenchus brachyurus*, *Pratylenchus fallax*, *Pratylenchus penetrans*, *Pratylenchus vulnus*, *Radopholus similis*, *Rotylenchus reniformis*, *Scutellonema bradys*, *Tylenchulus semipenetrans*, Stock- und
45 Blattnematoden z.B. *Anguina tritici*, *Aphelenchoides besseyi*, *Ditylenchus angustus*, *Ditylenchus dipsaci*, Virusvektoren, z.B.

13

Longidorus spp, *Trichodorus christei*, *Trichodorus viruliferus*,
Xiphinema index, *Xiphinema mediterraneum*.

Die Verbindungen I eignen sich außerdem als Fungizide.

5

Die Verbindungen I zeichnen sich durch eine hervorragende Wirk-
samkeit gegen ein breites Spektrum von pflanzenpathogenen Pilzen,
insbesondere aus der Klasse der Ascomyceten und Basidiomyceten,
aus. Sie sind zum Teil systemisch wirksam und können als Blatt-

10 und Bodenfungizide eingesetzt werden.

Besondere Bedeutung haben sie für die Bekämpfung einer Vielzahl
von Pilzen an verschiedenen Kulturpflanzen wie Weizen, Roggen,
Gerste, Hafer, Reis, Mais, Gras, Baumwolle, Soja, Kaffee, Zucker-
rohr, Wein, Obst- und Zierpflanzen und Gemüsepflanzen wie Gurken,
Bohnen und Kürbisgewächsen, sowie an den Samen dieser Pflanzen.

Speziell eignen sie sich zur Bekämpfung folgender Pflanzenkrank-
heiten: *Erysiphe graminis* (echter Mehltau) in Getreide, *Erysiphe*
20 *cichoracearum* und *Sphaerotheca fuliginea* an Kürbisgewächsen,
Podosphaera leucotricha an Äpfeln, *Uncinula necator* an Reben,
Puccinia-Arten an Getreide, *Rhizoctonia*-Arten an Baumwolle und
Rasen, *Ustilago*-Arten an Getreide und Zuckerrohr, *Venturia*
inaequalis (Schorf) an Äpfeln, *Helminthosporium*-Arten an
25 Getreide, *Septoria nodorum* an Weizen, *Botrytis cinerea* (Grau-
schimmel) an Erdbeeren, Reben, *Cercospora arachidicola* an Erd-
nüssen, *Pseudocercospora herpotrichoides* an Weizen, Gerste,
Pyricularia oryzae an Reis, *Phytophthora infestans* an Kartoffeln
und Tomaten, *Fusarium*- und *Verticillium*-Arten an verschiedenen
30 Pflanzen, *Plasmopara viticola* an Reben, *Alternaria*-Arten an
Gemüse und Obst.

Die Verbindungen I werden angewendet, indem man die Pilze
oder die vor Pilzbefall zu schützenden Pflanzen, Saatgüter,
35 Materialien oder den Erdboden mit einer fungizid wirksamen Menge
der Wirkstoffe behandelt. Die Anwendung erfolgt vor oder nach der
Infektion der Materialien, Pflanzen oder Samen durch die Pilze.

Sie können in die üblichen Formulierungen überführt werden, wie
40 Lösungen, Emulsionen, Suspensionen, Stäube, Pulver, Pasten und
Granulate. Die Anwendungsform richtet sich nach dem jeweiligen
Verwendungszweck; sie soll in jedem Fall eine feine und gleich-
mäßige Verteilung des ortho-substituierten Benzylesters einer
Cyclopropan-carbonsäure gewährleisten. Die Formulierungen werden
45 in bekannter Weise hergestellt, z.B. durch Verstrecken des Wirk-
stoffs mit Lösungsmitteln und/oder Trägerstoffen, gewünschten-
falls unter Verwendung von Emulgiermitteln und Dispergiermitteln,

14

- wobei im Falle von Wasser als Verdünnungsmittel auch andere organische Lösungsmittel als Hilfslösungsmittel verwendet werden können. Als Hilfsstoffe kommen dafür im wesentlichen in Betracht: Lösungsmittel wie Aromaten (z.B. Xylol), chlorierte Aromaten (z.B. Chlorbenzole), Paraffine (z.B. Erdölfraktionen), Alkohole (z.B. Methanol, Butanol), Ketone (z.B. Cyclohexanon), Amine (z.B. Ethanolamin, Dimethylformamid) und Wasser; Trägerstoffe wie natürliche Gesteinsmehle (z.B. Kaoline, Tonerden, Talkum, Kreide) und synthetische Gesteinsmehle (z.B. hochdisperse Kieselsäure, Silikate); Emulgiermittel wie nichtionogene und anionische Emulgatoren (z.B. Polyoxyethylen-Fettalkohol-Ether, Alkylsulfonate und Arylsulfonate) und Dispergiermittel wie Lignin-Sulfitablaugen und Methylcellulose.
- 15 Die fungiziden Mittel enthalten im allgemeinen zwischen 0,1 und 95, vorzugsweise zwischen 0,5 und 90 Gew.% Wirkstoff.
- Die Aufwandmengen liegen je nach Art des gewünschten Effektes zwischen 0,01 und 2,0 kg Wirkstoff pro ha.
- 20 Bei der Saatgutbehandlung werden im allgemeinen Wirkstoffmengen von 0,001 bis 0,1 g, vorzugsweise 0,01 bis 0,05 g je Kilogramm Saatgut benötigt.
- 25 Die Wirkstoffe können als solche, in Form ihrer Formulierungen oder den daraus bereiteten Anwendungsformen, z.B. in Form von direkt versprühbaren Lösungen, Pulvern, Suspensionen oder Dispersionen, Emulsionen, Öldispersionen, Pasten, Stäubemitteln, Streumitteln, Granulaten durch Versprühen, Vernebeln, Verstäuben, Verstreuen oder Gießen angewendet werden. Die Anwendungsformen richten sich ganz nach den Verwendungszwecken; sie sollten in jedem Fall möglichst die feinste Verteilung der erfindungsgemäßen Wirkstoffe gewährleisten.
- 35 Sie können in die üblichen Formulierungen übergeführt werden, wie Lösungen, Emulsionen, Suspensionen, Stäube, Pulver, Pasten oder Granulate. Die Anwendungsformen richten sich dabei nach dem jeweiligen Verwendungszweck; sie sollten in jedem Fall möglichst die feinste Verteilung der Wirkstoffe gewährleisten.
- 40 Die Formulierungen werden in bekannter Weise hergestellt, z.B. durch Verstrecken des Wirkstoffs mit Lösungsmitteln und/oder Trägerstoffen, gewünschtenfalls unter Verwendung von Emulgiermitteln und Dispergiermitteln, wobei im Falle von Wasser als Verdünnungsmittel auch andere organische Lösungsmittel als Hilfslösungsmittel verwendet werden können.
- 45

15

Als Hilfsstoffe kommen dafür im wesentlichen in Betracht:

- Lösungsmittel wie Aromaten (z.B. Xylol), chlorierte Aromaten (z.B. Chlorbenzole), Paraffine (z.B. Erdölfraktionen),
5 Alkohole (z.B. Methanol, Butanol), Ketone (z.B. Cyclohexanon), Amine (z.B. Ethanolamin, Dimethylformamid) und Wasser;
- Trägerstoffe wie natürliche Gesteinsmehle (z.B. Kaoline, Ton-
erden, Talkum, Kreide) und synthetische Gesteinsmehle (z.B.
10 hochdisperse Kieselsäure, Silikate);
- Emulgiermittel wie nichtionogene und anionische Emulgatoren (z.B. Polyoxyethylen-Fettalkohol-Ether, Alkylsulfonate und Arylsulfonate) und
- Dispergiermittel wie Ligninsulfit-Ablaugen und Methyl-
15 cellulose.

- Als oberflächenaktive Stoffe kommen die Alkali-, Erdalkali-, Ammoniumsalze von aromatischen Sulfonsäuren, z.B. Lignin-, Phenol-, Naphthalin- und Dibutyl-naphthalinsulfonsäure, sowie von
20 Fettsäuren, Alkyl- und Alkylarylsulfonaten, Alkyl-, Laurylether- und Fettalkoholsulfaten, sowie Salze sulfatierter Hexa-, Hepta- und Octadecanolen, sowie von Fettalkoholglykoether, Kondensationsprodukte von sulfoniertem Naphthalin und seiner Derivate mit Formaldehyd, Kondensationsprodukte des Naphthalins bzw. der
25 Naphthalinsulfonsäuren mit Phenol und Formaldehyd, Polyoxyethylenoctylphenolether, ethoxyliertes Isooctyl-, Octyl- oder Nonylphenol, Alkylphenol-, Tributylphenylpolyglykoether, Alkylarylpolyetheralkohole, Isotridecylalkohol, Fettalkoholethylenoxid-Kondensate, ethoxyliertes Rizinusöl, Polyoxyethylenalkyl-
30 ether oder Polyoxypropylen, Laurylalkoholpolyglykoetheracetat, Sorbitester, Lignin-Sulfitablaugen oder Methylcellulose in Betracht.

- Wäßrige Anwendungsformen können aus Emulsionskonzentraten,
35 Dispersionen, Pasten, netzbaren Pulvern oder wasserdispergierbaren Granulaten durch Zusatz von Wasser bereitet werden. Zur Herstellung von Emulsionen, Pasten oder Öldispersionen können die Substrate als solche oder in einem Öl oder Lösungsmittel gelöst, mittels Netz-, Haft-, Dispergier- oder Emulgiermittel in Wasser
40 homogenisiert werden. Es können aber auch aus wirksamer Substanz, Netz-, Haft-, Dispergier- oder Emulgiermittel und eventuell Lösungsmittel oder Öl bestehende Konzentrate hergestellt werden, die zur Verdünnung mit Wasser geeignet sind.

16

Pulver-, Streu- und Stäubemittel können durch Mischen oder gemeinsames Vermahlen der wirksamen Substanzen mit einem festen Trägerstoff hergestellt werden.

- 5 Granulate, z.B. Umhüllungs-, Imprägnierungs- und Homogengranulate können durch Bindung der Wirkstoffe an feste Trägerstoffe hergestellt werden.

- Feste Trägerstoffe sind Mineralerden wie Silicagel, Kieselsäuren, 10 Kieselgele, Silikate, Talkum, Kaolin, Kalkstein, Kalk, Kreide, Bolus, Löß, Ton, Dolomit, Diatomeenerde, Calcium- und Magnesiumsulfat, Magnesiumoxid, gemahlene Kunststoffe, Düngemittel, wie Ammoniumsulfat, Ammoniumphosphat, Ammoniumnitrat, Harnstoffe und pflanzliche Produkte, wie Getreidemehl, Baumrinden-, Holz- und 15 Nußschalenmehl, Cellulosepulver oder andere feste Trägerstoffe. Die Wirkstoffkonzentrationen in den anwendungsfertigen Zubereitungen können in größeren Bereichen variiert werden.

- Ganz allgemein enthalten die Mittel zwischen 0,0001 und 95 Gew.-% 20 Wirkstoff.

Formulierungen mit mehr als 95 Gew.-% Wirkstoff können mit gutem Erfolg im Ultra-Low-Volume-Verfahren (ULV) ausgebracht werden, wobei sogar der Wirkstoff ohne Zusätze verwendet werden kann.

25

Für die Anwendung gegen tierische Schädlinge kommen Formulierungen mit 0,0001 bis 10 Gew.%, vorzugsweise 0,01 bis 1 Gew.% Wirkstoff, in Betracht.

- 30 Die Wirkstoffe werden normalerweise in einer Reinheit von 90 % bis 100 %, vorzugsweise 95 % bis 100 % (nach NMR-Spektrum) eingesetzt.

Beispiele für solche Zubereitungen sind:

35

- I. eine Lösung aus 90 Gew.-Teilen einer erfindungsgemäßen Verbindung I und 10 Gew.-Teilen N-Methyl- α -pyrrolidon, die zur Anwendung in Form kleinster Tropfen geeignet ist;

- 40 II. eine Lösung von 20 Gew.-Teilen einer erfindungsgemäßen Verbindung I in einer Mischung aus 80 Gew.-Teilen alkyliertem Benzol, 10 Gew.-Teilen des Anlagerungsproduktes von 8 bis 10 Mol Ethylenoxid an 1 Mol Ölsäure-N-monoethanolamid, 5 Gew.-Teilen Calciumsalz der Dodecylbenzolsulfonsäure, 45 5 Gew.-Teilen des Anlagerungsproduktes von 40 Mol Ethylen

17

oxid an 1 Mol Ricinusöl; durch feines Verteilen der Formulierung in Wasser erhält man eine Dispersion.

- III. eine Lösung von 20 Gew.-Teilen einer erfindungsgemäßen
5 Verbindung I in einer Mischung aus 40 Gew.-Teilen Cyclohexanon, 30 Gew.-Teilen Isobutanol, 20 Gew.-Teilen des Anlagerungsproduktes von 7 Mol Ethylenoxid an 1 Mol Isooctylphenol und 10 Gew.-Teilen des Anlagerungsproduktes von 40 Mol Ethylenoxid an 1 Mol Ricinusöl; durch feines
10 Verteilen der Formulierung in Wasser erhält man eine Dispersion.
- IV. eine wäßrige Dispersion aus 20 Gew.-Teilen einer
erfindungsgemäßen Verbindung I, in einer Mischung aus
15 25 Gew.-Teilen Cyclohexanon, 65 Gew.-Teilen einer Mineralölfraktion vom Siedepunkt 210 bis 280 °C und 10 Gew.-Teilen des Anlagerungsproduktes von 40 mol Ethylenoxid an 1 mol Ricinusöl; durch feines Verteilen der Formulierung in Wasser erhält man eine Dispersion.
- 20 V. eine in einer Hammermühle vermahlene Mischung aus 20 Gew.-Teilen einer erfindungsgemäßen Verbindung I, 3 Gew.-Teilen des Natriumsalzes der Diisobutylnaphtalin- α -sulfonsäure, 17 Gew.-Teilen des Natriumsalzes einer Ligninsulfonsäure
25 aus einer Sulfitablauge und 60 Gew.-Teilen pulverförmigem Kieselsäuregel; durch feines Verteilen der Mischung in Wasser erhält man eine Spritzbrühe;
- VI. eine innige Mischung aus 3 Gew.-Teilen einer erfindungsgemäßen Verbindung I und 97 Gew.-Teilen feinteiligem
30 Kaolin; dieses Stäubemittel enthält 3 Gew.-% Wirkstoff;
- VII. eine innige Mischung aus 30 Gew.-Teilen einer erfindungsgemäßen Verbindung I, 92 Gew.-Teilen pulverförmigem Kiesel-
35 säuregel und 8 Gew.-Teilen Paraffinöl, das auf die Oberfläche dieses Kieselsäuregels gesprüht wurde; diese Aufbereitung gibt dem Wirkstoff eine gute Haftfähigkeit;
- VIII. eine stabile wäßrige Dispersion aus 40 Gew.-Teilen einer
40 erfindungsgemäßen Verbindung I, 10 Gew.-Teilen des Natriumsalzes eines Phenosulfonsäure-harnstoff-formaldehyd-Kondensates, 2 Gew.-Teilen Kieselgel und 48 Gew.-Teilen Wasser, die weiter verdünnt werden kann;
- 45 IX. eine stabile ölige Dispersion aus 20 Gew.-Teilen einer erfindungsgemäßen Verbindung I, 2 Gew.-Teilen des Calciumsalzes der Dodecylbenzolsulfonsäure, 8 Gew.-Teilen Fett-

18

alkohol-polyglykol-ether, 2 Gew.-Teilen des Natriumsalzes eines Phenolsulfonsäure-harnstoff-formaldehyd-Kondensates und 68 Gew.-Teilen eines paraffinischen Mineralöls;

- 5 X. eine in einer Hammermühle vermahlene Mischung aus 10 Gew.-Teilen einer erfindungsgemäßen Verbindung I, 4 Gew.-Teilen des Natriumsalzes der Diisobutyl-naphthalin- α -sulfonsäure, 20 Gew.-Teilen des Natriumsalzes einer Ligninsulfonsäure aus einer Sulfitablauge, 38 Gew.-Teilen Kieselsäuregel und 10 38 Gew.-Teilen Kaolin. Durch feines Verteilen der Mischung in 10 000 Gew.-Teilen Wasser erhält man eine Spritzbrühe, die 0,1 Gew.% des Wirkstoffs enthält.

Die Verbindungen I werden angewendet, indem man die Schädlinge 15 oder Schadpilze oder die vor Schädlingen oder Schadpilzen zu schützenden Saatgüter, Pflanzen, Materialien oder den Erdboden mit einer wirksamen Menge der Wirkstoffe behandelt.

Die Anwendung erfolgt vor oder nach der Infektion der Materia- 20 lien, Pflanzen oder Samen durch die Schadpilze.

Die Aufwandmengen liegen je nach Art des gewünschten Effektes zwischen 0,02 und 3 kg Wirkstoff pro ha, vorzugsweise bei 0,1 bis 1 kg/ha.

25

Bei der Saatgutbehandlung werden im allgemeinen Wirkstoffmengen von 0,001 bis 50 g, vorzugsweise 0,01 bis 10 g je Kilogramm Saatgut benötigt.

30 Die Aufwandmenge an Wirkstoff für die Bekämpfung von Schädlingen oder Schadpilzen beträgt unter Freilandbedingungen 0,02 bis 10, vorzugsweise 0,1 bis 2,0 kg/ha Wirkstoff.

Die Verbindungen I, allein oder in Kombination mit Herbiziden 35 oder Fungiziden, können auch noch mit weiteren Pflanzenschutzmitteln gemischt gemeinsam ausgebracht werden, beispielsweise mit Wachstumsregulatoren oder mit Mitteln zur Bekämpfung von Schädlingen oder Bakterien. Von Interesse ist ferner die Mischbarkeit mit Düngemitteln oder mit Mineralsalzlösungen, welche zur Behe- 40 bung von Ernährungs- und Spurenelementmängeln eingesetzt werden.

Die Pflanzenschutz- und Düngemittel können zu den erfindungsgemäßen Mitteln im Gewichtsverhältnis 1:10 bis 10:1 zugesetzt werden, gegebenenfalls auch erst unmittelbar vor der Anwendung 45 (Tankmix). Beim Vermischen mit Fungiziden oder Insektiziden er-

19

hält man dabei in vielen Fällen eine Vergrößerung des fungiziden Wirkungsspektrums.

- Die folgende Liste von Fungiziden, mit denen die erfindungs-
 5 gemäßen Verbindungen gemeinsam angewendet werden können, soll die Kombinationsmöglichkeiten erläutern, nicht aber einschränken:

- Schwefel, Dithiocarbamate und deren Derivate, wie Ferridimethyldithiocarbamat, Zinkdimethyldithiocarbamat, Zinkethylenbisdithiocarbamat, Manganethylenbisdithiocarbamat, Mangan-Zink-ethylen-
 10 diamin-bis-dithiocarbamat, Tetramethylthiuramdisulfide, Ammoniak-Komplex von Zink-(N,N-ethylen-bis-dithiocarbamat), Ammoniak-Komplex von Zink-(N,N'-propylen-bis-dithiocarbamat), Zink-(N,N'-propylen-bis-dithiocarbamat), N,N'-Polypropylen-bis-(thio-
 15 carbamoyl)-disulfid; Nitroderivate, wie Dinitro-(1-methylheptyl)-phenylcrotonat, 2-sec-Butyl-4,6-dinitrophenyl-3,3-dimethylacrylat, 2-sec-Butyl-4,6-dinitrophenyl-isopropylcarbonat, 5-Nitro-isophthals^oure-di-isopropylester;
- 20 heterocyclische Substanzen, wie 2-Heptadecyl-2-imidazolin-acetat, 2,4-Dichlor-6-(o-chloranilino)-s-triazin, O,O-Diethyl-phthalimidophosphonothioat, 5-Amino-1-β-[bis-(dimethylamino)-phosphinyl]-3-phenyl-1,2,4-triazol, 2,3-Dicyano-1,4-dithioanthrachinon, 2-Thio-1,3-dithiolo-β-[4,5-b]chinoxalin, 1-(Butylcarbamoyl)-2-
 25 benzimidazol-carbaminsäuremethylester, 2-Methoxycarbonylamino-benzimidazol, 2-(Furyl-(2))-benzimidazol, 2-(Thiazolyl-(4))-benzimidazol, N-(1,1,2,2-Tetrachlorethylthio)-tetrahydrophthalimid, N-Trichlormethylthio-tetrahydrophthalimid, N-Trichlormethylthio-phthalimid, N-Dichlorfluormethylthio-N',N'-dimethyl-N-phenyl-
 30 schwefelsäurediamid, 5-Ethoxy-3-trichlormethyl-1,2,3-thiadiazol, 2-Rhodanmethylthiobenzthiazol, 1,4-Dichlor-2,5-dimethoxybenzol, 4-(2-Chlorphenylhydrazono)-3-methyl-5-isoxazonon, Pyridin-2-thio-1-oxid, 8-Hydroxychinolin bzw. dessen Kupfersalz, 2,3-Dihydro-5-carboxanilido-6-methyl-1,4-oxathiin, 2,3-Dihydro-
 35 5-carboxanilido-6-methyl-1,4-oxathiin-4,4-dioxid, 2-Methyl-5,6-dihydro-4H-pyran-3-carbonsäure-anilid, 2-Methyl-furan-3-carbonsäureanilid, 2,5-Dimethyl-furan-3-carbonsäureanilid, 2,4,5-Tri-methyl-furan-3-carbonsäureanilid, 2,5-Dimethyl-furan-3-carbonsäurecyclohexylamid, N-Cyclohexyl-N-methoxy-2,5-dimethyl-furan-3-
 40 carbonsäureamid, 2-Methyl-benzoesäure-anilid, 2-Iod-benzoesäure-anilid, N-Formyl-N-morpholin-2,2,2-trichlorethylacetal, Piperazin-1,4-diylbis-(1-(2,2,2-trichlor-ethyl)-formamid, 1-(3,4-Dichloranilino)-1-formylamino-2,2,2-trichlorethan, 2,6-Dimethyl-N-tridecyl-morpholin bzw. dessen Salze,
 45 2,6-Dimethyl-N-cyclododecyl-morpholin bzw. dessen Salze, N-[3-(p-tert.-Butylphenyl)-2-methylpropyl]-cis-2,6-dimethyl-morpholin, N-[3-(p-tert.-Butylphenyl)-2-methylpropyl]-piperidin,

20

- 1-[2-(2,4-Dichlorphenyl)-4-ethyl-1,3-dioxolan-2-yl-ethyl]-1H-1,2,4-triazol 1-[2-(2,4-Dichlorphenyl)-4-n-propyl-1,3-dioxolan-2-yl-ethyl]-1H-1,2,4-triazol, N-(n-Propyl)-N-(2,4,6-trichlorphenoxyethyl)-N'-imidazol-yl-harnstoff, 1-(4-Chlorphenoxy)-3,3-
- 15 dimethyl-1-(1H-1,2,4-triazol-1-yl)-2-butanon, 1-(4-Chlorphenoxy)-3,3-dimethyl-1-(1H-1,2,4-triazol-1-yl)-2-butanol, α -(2-Chlorphenyl)- α -(4-chlorphenyl)-5-pyrimidin-methanol, 5-Butyl-2-dimethylamino-4-hydroxy-6-methyl-pyrimidin, Bis-(p-chlorphenyl)-3-pyridinmethanol, 1,2-Bis-(3-ethoxycarbonyl-2-thioureido)-benzol, 1,2-Bis-(3-methoxycarbonyl-2-thioureido)-benzol,

- sowie verschiedene Fungizide, wie Dodecylguanidinacetat, 3-[3-(3,5-Dimethyl-2-oxycyclohexyl)-2-hydroxyethyl]-glutarimid,
- 15 Hexachlorbenzol, DL-Methyl-N-(2,6-dimethyl-phenyl)-N-furoyl(2)-alaninat, DL-N-(2,6-Dimethyl-phenyl)-N-(2'-methoxyacetyl)-alaninmethylester, N-(2,6-Dimethylphenyl)-N-chloracetyl-D,L-2-amino-butylolacton, DL-N-(2,6-Dimethylphenyl)-N-(phenylacetyl)-alaninmethylester, 5-Methyl-5-vinyl-3-(3,5-dichlorphenyl)-2,4-dioxo-
- 20 1,3-oxazolidin, 3-[3,5-Dichlorphenyl(-5-methyl-5-methoxymethyl)-1,3-oxazolidin-2,4-dion, 3-(3,5-Dichlorphenyl)-1-isopropyl-carbamoylhydantoin, N-(3,5-Dichlorphenyl)-1,2-dimethylcyclopropan-1,2-dicarbonensäureimid, 2-Cyano-[N-(ethylaminocarbonyl)-2-methoximino]-acetamid, 1-[2-(2,4-Dichlorphenyl)-pentyl]-
- 25 1H-1,2,4-triazol, 2,4-Difluor- α -(1H-1,2,4-triazolyl-1-methyl)-benzhydrylalkohol, N-(3-Chlor-2,6-dinitro-4-trifluormethylphenyl)-5-trifluormethyl-3-chlor-2-aminopyridin, 1-((bis-(4-Fluorphenyl)-methylsilyl)-methyl)-1H-1,2,4-triazol.

30 Synthesebeispiele

Die in den nachstehenden Synthesebeispielen wiedergegebenen Vorschriften wurden unter entsprechender Abwandlung der Ausgangsverbindungen bzw. Zwischenprodukte zur Gewinnung weiterer

- 35 Verbindungen I benutzt. Die so erhaltenen Verbindungen sind in den anschließenden Tabellen mit physikalischen Daten aufgeführt.

Beispiel 1

2-Isopropoxy-6-trifluormethyl-4-hydroxypyrimidin

40

- Zu 357,8 g O-Isopropylisoharnstoff-Hydrochlorid (oder O-Isopropyluroniumchlorid) in 906 ml absolutem Ethanol werden bei Raumtemperatur 465 g 30 %ige methanolische Natriummethanolat-Lösung zugetropft. Nach weiteren 10 min tropft man hierzu unter
- 45 leicht exothermer Reaktion 475,2 g Trifluoracetessigsäureethylester. Nach 12 h Erwärmen unter Rückfluß engt man den Ansatz im Rotationsverdampfer ein und nimmt den Rückstand in 1 Liter Wasser

21

auf. Die Wasserphase wird mit Salzsäure schwach sauer gestellt und dann mit Methyl-tert.butylether extrahiert. Die vereinigten Etherphasen werden mit Wasser gewaschen, über Natriumsulfat getrocknet und abschließend zur Trockene eingengt. Der Rückstand wird mit Petrolether verrührt, abgesaugt und getrocknet.

Man erhält 294,5 g der Titelverbindung als farblose Kristalle.

Fp. 126-127°C

10

¹H-NMR (CDCl₃, δ in ppm):

1,4 (6H); 5,9 (1H); 6,5 (1H); 12,2 (1H)

Beispiel 2

15 3-Methoxy-2-[2-methylsulfonyl-6-trifluormethyl-pyrimidin-4-yloxy-methyl-phenyl]-acrylsäuremethylester (Tab. I.04)

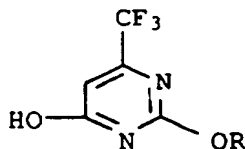
Zu einer Suspension von 3,9 g 3-Methoxy-2-[2-methylthio-6-trifluormethyl-pyrimidin-4-yloxymethyl)-phenyl]-acrylsäuremethylester in 19 ml Eisessig fügt man 0,15 g Dinatriumwolframat·2H₂O hinzu und tropft bei 20-30°C langsam 2,8 ml 30 %ige wäßrige H₂O₂ Lösung zu. Der Ansatz klärt innerhalb 1 h auf und wird noch 12 h bei Raumtemperatur gerührt. Zur Aufarbeitung gießt man auf 100 ml Eiswasser, dekantiert nach ca. 30 min den Überstand ab und nimmt den verbleibenden zähen Feststoff in Essigsäureethylester auf. Diese organische Phase wird mit Wasser gewaschen, über Natriumsulfat getrocknet und abschließend eingengt. Es verbleiben 4,0 g der Titelverbindung als hellgelbes Öl.

30 ¹H-NMR (CDCl₃, δ in ppm):

3,3 (3H); 3,65 (3H); 3,85 (3H); 5,5 (2H); 7,15 (1H); 7,2 (1H); 7,4 (2H); 7,55 (1H); 7,6 (1H)

Tabelle II

35



II

40

Nr.	R	Fp. [°C]
II.01	CH ₃	142-143
II.02	CH ₂ CH ₃	102-106
II.03	CH(CH ₃) ₂	118-120

45

Beispiel 3

22

3-Methoxy-2-[2-(2-isopropoxy-6-trifluormethyl-pyrimidin-4-yloxy-methyl)-phenyl]-acrylsäuremethylester (I.03)

- Zur Herstellung des Kaliumsalzes des Hydroxypyrimidins aus Beispiel 1 werden 222 g Hydroxyverbindung in 855 ml Ethanol gelöst und zu einer Lösung von 56 g Kaliumhydroxid in 855 ml Ethanol getropft. Nach 3stündigem Erhitzen unter Rückfluß wird der Ansatz eingeeengt und der Rückstand in 2 l N,N-Dimethylformamid aufgenommen. Zu dieser Lösung des Kaliumsalzes gibt man 280 g
- 10 3-Methoxy-2-[2-brommethylphenyl]-acrylsäuremethylester und rührt anschließend 12 h bei 60°C. Zur Aufarbeitung gießt man auf Eiswasser und extrahiert nochmals mit Methyl-tert.-butylether. Die vereinigten Etherphasen werden mit Wasser gewaschen, über Natriumsulfat getrocknet und abschließend eingeeengt. Zur Abtrennung
- 15 eines N-alkylierten Nebenproduktes wird der Rückstand in 1 Liter Methanol gelöst und mit 250 ml Wasser versetzt. Der kristalline Niederschlag wird abgesaugt, mit Petrolether gewaschen und getrocknet. Man erhält 211 g der Titelverbindung.

20 Fp. 107°C

¹H-NMR (CDCl₃, δ in ppm):

1,4 (6H); 3,7 (3H); 3,8 (3H); 5,3 (1H); 5,35 (2H); 6,65 (1H);
7,2 (1H); 7,4 (2H); 7,5 (1H); 7,55 (1H)

25

Beispiel 4

2-Methoxyimino-2-[3-chlor-2-(2-isopropoxy-6-trifluormethylpyrimidin-4-yloxy-methyl)-phenyl]-essigsäuremethylester (I.08)

- 30 3,3 g 2-Isopropoxyloxy-4-hydroxy-6-trifluormethylpyrimidin und 2,4 g Kaliumcarbonat werden in 100 ml Dimethylformamid 30 min. bei Raumtemperatur (ca. 25°C) gerührt und anschließend tropfenweise innerhalb 1 Std. mit einer Lösung aus 4,8 g 2-Methoxyimino-2-[2-brommethyl-3-chlorphenyl]-essigsäuremethylester in
- 35 30 ml Dimethylformamid versetzt. Nach weiteren 8 Std. bei Raumtemperatur gibt man die Reaktionsmischung in Eiswasser und extrahiert das Produkt mit tert.-Butyl-methylether. Die vereinigten Etherphasen werden getrocknet und eingeeengt. Das so erhaltene Rohprodukt wird chromatographisch (Kieselgel/Toluol) gereinigt.
- 40 Man erhält 4,2 g der Titelverbindung.

Fp. 106-108°C

¹H-NMR (CDCl₃, δ in ppm):

- 45 1,4 (6H); 3,85 (3H); 4,0 (3H); 5,35 (1H); 5,45 (1H); 6,6 (1H);
7,1 (1H); 7,4 (1H); 7,55 (1H)

23

Beispiel 5

2-Methoxyimino-2-[3-chlor-2-(2-isopropoxy-6-trifluormethyl-pyrimidin-4-yloxymethyl)-phenyl]-essigsäuremethylester (I.11)

- 5 Eine Mischung aus 2,0 g des Methylesters aus Beispiel 4 und 70 ml Tetrahydrofuran werden mit 2 ml einer 40%-igen wäßrigen Methy-
 10 amid-Lösung versetzt. Zu der Reaktionsmischung gibt man nach 8 Std. bei Raumtemperatur (ca. 25°C) 100 ml tert.-Butyl-methylether. Die so erhaltene Mischung wird 3mal mit 20%-iger Citronensäure
 15 und 2 mal mit Wasser gewaschen. Die organische Phase wird geg-
 trocknet und eingeeengt. Das so erhaltene Rohprodukt wird
 chromatographisch [Kieselgel/Toluol:Essigsäureethylester (9:1)]
 gereinigt. Man erhält 1,0g der Titelverbindung.

15 Fp. 116-118°C

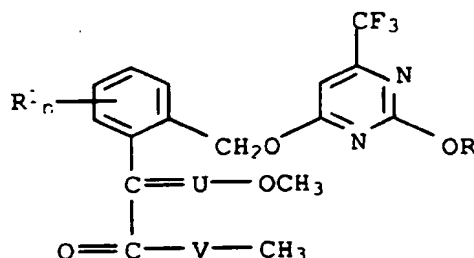
¹H-NMR: (CDCl₃, δ in ppm):

1,4 (6H); 2,95 (3H); 3,9 (3H); 5,35 (1H); 5,45 (1H); 6,6 (1H);
 6,8 (NH); 7,1 (1H); 7,35 (1H); 7,5 (1H)

20

Tabelle I

25



I

30

35

40

45

Nr.	U	V	R ¹ _n	R	phys. Daten [Fp. (°C), IR (cm ⁻¹), ¹ H-NMR (ppm)]
I.01	CH	O	H	CH ₃	3,65 (3H); 3,75 (3H); 4,0 (3H); 5,4 (2H); 6,65 (1H); 7,1-7,6 (5H)
I.02	CH	O	H	CH ₂ CH ₃	66-68
I.03	CH	O	H	CH(CH ₃) ₂	107
I.04	CH	O	3-Cl	CH(CH ₃) ₂	1,4 (6H); 3,7 (3H); 3,85 (3H); 5,35 (1H); 5,5 (2H)
I.05	N	O	H	CH ₃	65-72
I.06	N	O	H	CH ₂ CH ₃	72-75
I.07	N	O	H	CH(CH ₃) ₂	84-88

24

5	Nr.	U	V	R ¹ _n	R	phys. Daten [Fp. (°C), IR (cm ⁻¹), ¹ H-NMR (ppm)]
	I.08	N	O	3-Cl	CH(CH ₃) ₂	106-108
	I.09	N	NH	H	CH ₂ CH ₃	88-90
	I.10	N	NH	H	CH(CH ₃) ₂	86-88
	I.11	N	NH	3-Cl	CH(CH ₃) ₂	116-118

10 Beispiele zur Wirkung gegen tierische Schädlinge

Die Wirkung der Verbindungen der allgemeinen Formel I gegen tierische Schädlinge ließ sich durch folgende Versuche zeigen: Die Wirkstoffe wurden

15

a) als 0,1 %-ige Lösung in Aceton oder

b) als 10 %-ige Emulsion in einem Gemisch aus 70 Gew.-% Cyclohexanon, 20 Gew.-% Nekanil® LN (Lutensol® AP6, Netzmittel mit Emulgier- und Dispergierwirkung auf der Basis ethoxylierter Alkylphenole) und 10 Gew.-% Emulphor® EL (Emulan® EL, Emulgator auf der Basis ethoxylierter Fettalkohole)

20

25 aufbereitet und entsprechend der gewünschten Konzentration mit Aceton im Fall von a) bzw. mit Wasser im Fall von b) verdünnt.

Nach Abschluß der Versuche wurde die jeweils niedrigste Konzentration ermittelt, bei der die Verbindungen im Vergleich zu unbehandelten Kontrollversuchen noch eine 80 - 100 %-ige Hemmung bzw. Mortalität hervorriefen (Wirkschwelle bzw. Minimalkonzentration).

30

Tetranychus telarius (Rote Spinne), Kontaktwirkung

35 Stark befallene getopfte Buschbohnen, die das zweite Folgeblatt-paar zeigten, wurden mit wässrigen Wirkstoffaufbereitung behandelt. Nach 5 Tagen im Gewächshaus wurde der Bekämpfungserfolg mittels Binokular bestimmt.

40 In diesem Test zeigten die Verbindungen I.01-I.07 und I.09-I.11 Wirkschwellen von 2 bis 400 ppm.

Nephotettix cincticeps (Grüne Reiszikade), Kontaktwirkung

45

25

Rundfilter wurden mit der wäßrigen Wirkstoffaufbereitung behandelt und anschließend mit 5 adulten Zikaden belegt. Nach 24 h wurde die Mortalität beurteilt.

- 5 In diesem Test zeigten die Verbindungen I.07 und I.08 Wirkungsschwellen von 0,4 mg.

Beispiele für die Wirkung gegen Schadpilze

- 10 Die fungizide Wirkung der Verbindungen der allgemeinen Formel I ließ sich durch die folgenden Versuche zeigen:

- Die Wirkstoffe wurden als 20%-ige Emulsion in einem Gemisch aus 70 Gew.-% Cyclohexanon, 20 Gew.-% Nekanil® LN (Lutensol® AP6, 15 Netzmittel mit Emulgier- und Dispergierwirkung auf der Basis ethoxylierter Alkylphenole) und 10 Gew.-% Emulphor® EL (Emulan® EL, Emulgator auf der Basis ethoxylierter Fettalkohole) aufbereitet und entsprechend der gewünschten Konzentration mit Wasser verdünnt.

- 20 Als Vergleichsverbindung diente der Wirkstoff A (Beispiel Nr. 25, Tabelle I der EP-A 407 872).

Wirkung gegen *Plasmopara viticola* (*Rebenperonospora*)

- 25 Topfreben (Sorte: "Müller Thurgau") wurden mit der Wirkstoffaufbereitung tropfnaß gespritzt. Nach 8 Tagen wurden die Pflanzen mit einer Zoosporenaufschwemmung des Pilzes *Plasmopara viticola* besprüht und 5 Tage bei 20-30°C bei hoher Luftfeuchtigkeit bewahrt. Vor der Beurteilung wurden die Pflanzen danach für 16 h bei hoher Luftfeuchtigkeit bewahrt. Die Auswertung erfolgte visuell.

- 35 In diesem Test zeigten die mit 250 ppm der erfindungsgemäßen Verbindungen I.01-I.07, I.10 und I.11 behandelten Pflanzen einen Befall von 5% und weniger während die mit der gleichen Menge des bekannten Wirkstoffs A behandelten Pflanzen zu 25% befallen waren. Die unbehandelten (Kontroll-) Pflanzen waren zu 75% befallen.

40

Wirkung gegen *Pyricularia oryzae* (*Reisbrand*)

- Reiskeimlinge (Sorte: "Tai Nong 67") wurden mit der Wirkstoffaufbereitung tropfnaß gespritzt. Nach 24 Stunden wurden die Pflanzen mit einer wäßrigen Sporensuspension des Pilzes *Pyricularia oryzae*

26

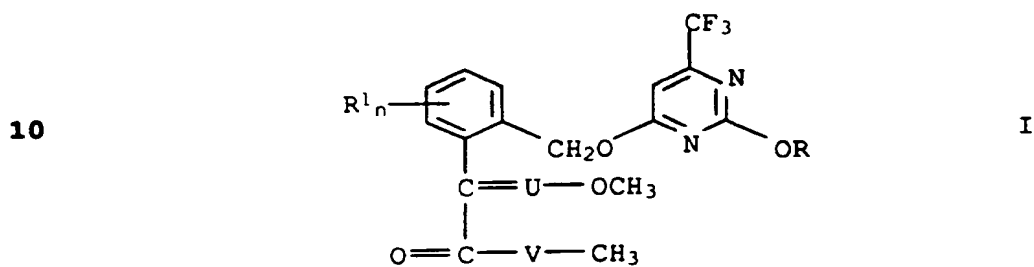
besprüht und 6 Tage bei 22-24°C bei einer relativen Luftfeuchtigkeit von 95-99 % bewahrt. Die Beurteilung erfolgte visuell.

In diesem Test zeigten die mit 250 ppm der erfindungsgemäßen
5 Verbindungen I.01, I.02, I.04, I.06-I.08, I.10 und I.11 behandelten Pflanzen einen Befall von 25% und weniger während die mit der gleichen Menge des bekannten Wirkstoffs A behandelten Pflanzen zu 60% befallen waren. Die unbehandelten (Kontroll-) Pflanzen waren zu 85% befallen.

10**15****20****25****30****35****40****45**

Patentansprüche

1. 2-[(2-Alkoxy-6-trifluormethylpyrimidin-4-yl)-oxymethylen]-
 5 phenyllessigsäurederivate der Formel I



15

in der der Index und die Substituenten die folgenden Bedeutung haben:

20

U CH oder N;

V O oder NH;

R C₁-C₆-Alkyl;

R¹ Cyano, Halogen, C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy und Phenyl;

25

n 0 oder eine ganze Zahl von 1 bis 4, wobei die Reste R¹ verschieden sein können, wenn der Wert von n größer als 1 ist.

30

2. Verbindungen der Formel I gemäß Anspruch 1, in denen U für CH und V für O steht.

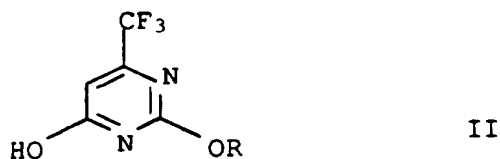
3. Verbindungen der Formel I gemäß Anspruch 1, in denen U für N und V für O steht.

35

4. Verbindungen der Formel I gemäß Anspruch 1, in denen U für N und V für NH steht.

5. Verfahren zur Herstellung der Verbindungen I gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß man ein Pyrimidin-4-ol der Formel II

40

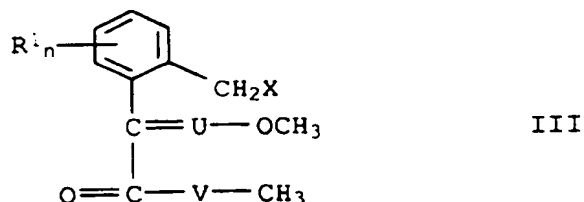


45

28

in an sich bekannter Weise in einem inerten organischen Lösungsmittel in Gegenwart einer Base mit einem Benzylderivat der Formel III

5



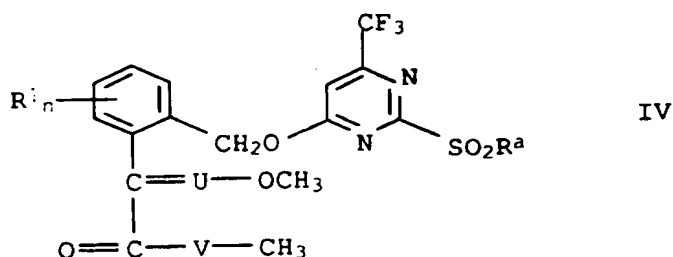
10

in der X für eine nucleophil austauschbare Abgangsgruppe steht, umgesetzt.

6. Verfahren zur Herstellung der Verbindungen I gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß man ein Sulfonderivat der Formel IV

15

20



25

in der R^a für C₁-C₄-Alkyl steht, in Gegenwart einer Base mit einem Alkohol der Formel V



V

30

umsetzt.

7. Pyrimidin-4-ole der Formel II gemäß Anspruch 5.

8. Verwendung der Pyrimidin-4-ole der Formel II gemäß Anspruch 5 als Zwischenprodukte.

9. Sulfonderivate der Formel IV gemäß Anspruch 6.

10. Verwendung der Sulfonderivate der Formel IV gemäß Anspruch 6 als Zwischenprodukte.

11. Zur Bekämpfung von tierischen Schädlingen und Schadpilzen geeignetes Mittel, enthaltend einen festen oder flüssigen Trägerstoff und eine Verbindung der Formel I gemäß Anspruch 1.

45

29

12. Verfahren zur Bekämpfung von tierischen Schädlingen und
Schadpilzen, dadurch gekennzeichnet, daß man die Schädlinge
bzw. Schadpilze oder die von ihnen zu schützenden Materia-
lien, Pflanzen, Boden oder Saatgüter mit einer wirksamen
5 Menge einer Verbindung der Formel I gemäß Anspruch 1 behan-
delt.
13. Verwendung der Verbindungen der Formel I gemäß Anspruch 1 zur
Herstellung eines zur Bekämpfung von tierischen Schädlingen
10 oder Schadpilzen geeigneten Mittels.
14. Verwendung der Verbindungen der Formel I gemäß Anspruch 1 zur
Bekämpfung von tierischen Schädlingen oder Schadpilzen..
- 15
- 20
- 25
- 30
- 35
- 40
- 45

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Int. Application No
PCT/EP 95/04375

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 6 C07D239/52 C07D239/56 A01N43/54

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 6 C07D

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	EP,A,0 513 580 (BASF) 19 November 1992 see page 162 - page 172; claims; example 79	1,2,5,11
X	--- JOURNAL OF HETEROCYCLIC CHEMISTRY, vol.9, no.3, June 1972, PROVO US pages 513 - 521 ALBERT W. LUTZ ET AL. 'NOVEL 6-TRIFLUOROMETHYL CYTOSINES AND URACILS.' see page 516 - page 518; example 6 -----	7,8

☐ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

* Special categories of cited documents :

- *A* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- *E* earlier document but published on or after the international filing date
- *L* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- *O* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- *P* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- *T* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- *X* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- *Y* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.
- *A* document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

9 February 1996

Date of mailing of the international search report

16.02.96

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+ 31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax (+ 31-70) 340-3016

Authorized officer

Francois, J

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 95/04375

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP-A-0513580	19-11-92	DE-A- 4116090	19-11-92
		AU-B- 648664	28-04-94
		AU-B- 1626892	19-11-92
		CA-A- 2068017	18-11-92
		JP-A- 5213815	24-08-93
		NZ-A- 242758	22-12-94
		US-A- 5298527	29-03-94
		US-A- 5416068	16-05-95
		ZA-A- 9203534	15-11-93

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP 95/04375

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES
IPK 6 C07D239/52 C07D239/56 A01N43/54

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)
IPK 6 C07D

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	EP,A,0 513 580 (BASF) 19. November 1992 siehe Seite 162 - Seite 172; Ansprüche; Beispiel 79	1,2,5,11
X	--- JOURNAL OF HETEROCYCLIC CHEMISTRY, Bd.9, Nr.3, Juni 1972, PROVO US Seiten 513 - 521 ALBERT W. LUTZ ET AL. 'NOVEL 6-TRIFLUOROMETHYL CYTOSINES AND URACILS.' siehe Seite 516 - Seite 518; Beispiel 6 -----	7,8

☐ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

☒ Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

- * 'A' Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist
- * 'E' älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist
- * 'L' Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)
- * 'O' Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht
- * 'P' Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

* 'T' Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

* 'X' Veröffentlichung von besonderer Bedeutung, die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

* 'Y' Veröffentlichung von besonderer Bedeutung, die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

* 'A' Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

9. Februar 1996

Absenddatum des internationalen Recherchenberichts

16.02.96

Name und Postanschrift der Internationale Recherchenbehörde
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Francois, J

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 95/04375

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
EP-A-0513580	19-11-92	DE-A- 4116090	19-11-92
		AU-B- 648664	28-04-94
		AU-B- 1626892	19-11-92
		CA-A- 2068017	18-11-92
		JP-A- 5213815	24-08-93
		NZ-A- 242758	22-12-94
		US-A- 5298527	29-03-94
		US-A- 5416068	16-05-95
		ZA-A- 9203534	15-11-93
